

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2003年12月31日 (31.12.2003)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/001884 A1

(51) 国際特許分類: H01M 8/02, 4/88, 4/96, 8/10

(21) 国際出願番号: PCT/JP2003/007981

(22) 国際出願日: 2003年6月24日 (24.06.2003)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願2002-183412 2002年6月24日 (24.06.2002) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 日本電気株式会社 (NEC CORPORATION) [JP/JP]; 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 Tokyo (JP).

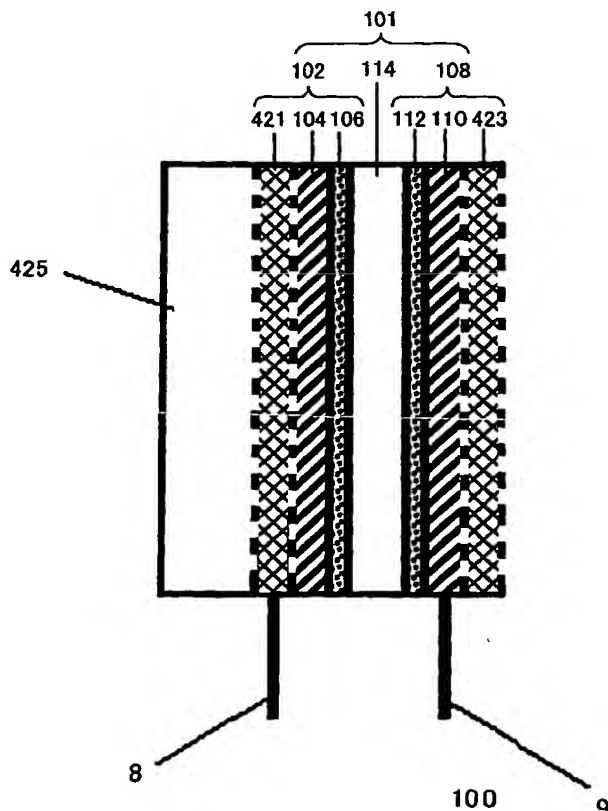
(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 吉武 務 (YOSHITAKE, Tsutomu) [JP/JP]; 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 中村 新 (NAKAMURA, Shin) [JP/JP]; 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 木村 英和 (KIMURA, Hidekazu) [JP/JP]; 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 黒島 貞則 (KUROSHIMA, Sadanori) [JP/JP]; 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 島川 祐一 (SHIMAKAWA, Yuichi) [JP/JP]; 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 眞子 隆志 (MANAKO, Takashi) [JP/JP]; 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 今井 英人 (IMAI, Hideto) [JP/JP]; 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 久保

[続葉有]

(54) Title: FUEL CELL, ELECTRODE FOR FUEL CELL AND METHOD FOR PRODUCING THEM

(54) 発明の名称: 燃料電池、燃料電池用電極およびそれらの製造方法



(57) Abstract: A small, light-weight fuel cell having a high output density being employed in a portable apparatus. A fuel pole-side current collector (421) (or an oxidizing agent-side current collector (423)) is rendered thin and light-weight by bonding it to the base body (104) (or the base body (110)) of the fuel pole (102) (or the oxidizing agent pole (08)) of a fuel cell (100), thus realizing a structure requiring no end plate nor fastener. Fuel or oxidizing agent is supplied directly on to the surface of the fuel pole-side current collector (421) or the oxidizing agent-side current collector (423).

(57) 要約: 携帯機器に用いるために小型軽量で、かつ、出力密度の高い燃料電池を提供する。燃料電池100の燃料極102(または酸化剤極108)の基体104(または基体110)に、燃料極側集電体421(または酸化剤極側集電体423)を接着させることにより、燃料極側集電体421(または酸化剤極側集電体423)を薄型軽量化し、エンドプレートや締結部品が不要な構成とする。燃料または酸化剤は燃料極側集電体421または酸化剤極側集電体423の表面に直接供給される。



佳実 (KUBO, Yoshimi) [JP/JP]; 〒108-8001 東京都 港区
芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 天野 広 (AMANO, Hiroshi); 〒105-0014 東京
都 港区 芝三丁目 4 0 番 4 号 シャイン三田ビル 5 階
Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): CA, CN, KR, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY,
CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC,
NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される
各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

燃料電池、燃料電池用電極およびそれらの製造方法

発明の技術分野

本発明は、燃料電池、燃料電池用電極及びそれらの製造方法に関する。

従来の技術

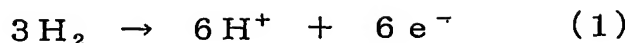
近年の情報化社会の到来とともに、パーソナルコンピュータその他の電子機器が扱う情報量が飛躍的に増大し、それに伴い、電子機器の消費電力も著しく増加してきた。特に、携帯型の電子機器においては、処理能力の増加に伴う消費電力の増加に対する対策が急務となっている。

現在、このような携帯型の電子機器においては、一般的には、リチウムイオン電池が電源として用いられているが、リチウムイオン電池のエネルギー密度は理論的な限界に近づいている。そのため、携帯型の電子機器の連続使用期間を延ばすために、中央処理装置（CPU）の駆動周波数を抑えて消費電力を低減しなければならないという制限があった。

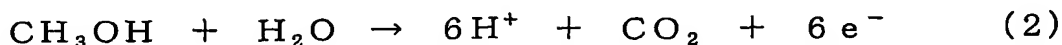
このような状況の中で、リチウムイオン電池に変えて、エネルギー密度が大きく、熱交換率の高い燃料電池を電子機器の電源として用いることにより、携帯型の電子機器の連続使用期間を大幅に向上させる試みがなされている。

燃料電池は、一般的には、燃料極と、酸化剤極と、これら両極の間に設けられた電解質とから構成され、燃料極には燃料が、酸化剤極には酸化剤がそれぞれ供給され、電気化学反応により発電する。燃料としては、一般的には、水素が用いられるが、近年、安価で取り扱いの容易なメタノールを原料として、メタノールを改質して水素を生成させるメタノール改質型や、メタノールを燃料として直接利用するダイレクトメタノール固体電解質型燃料電池の開発も盛んに行われている。

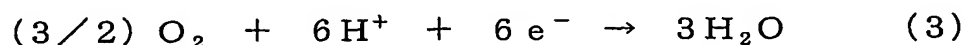
燃料として水素を用いた場合、燃料極における反応式は以下の式（１）のようになる。



燃料としてメタノールを用いた場合、燃料極における反応式は以下の式 (2) のようになる。



また、いずれの場合も、酸化剤極における反応式は以下の式 (3) のようになる。



特に、ダイレクトメタノール固体電解質型燃料電池においては、メタノール水溶液から水素イオンを得ることができるので、改質器を備えることが不要になるため、小型化及び軽量化を図ることができ、携帯型の電子機器へ適用することの利点が大きくなる。また、液体のメタノール水溶液を燃料とするため、エネルギー密度が非常に高いという特徴がある。

ダイレクトメタノール固体電解質型燃料電池は、単位セルの発生電圧が 1 V 以下であるため、携帯電話等の携帯機器に応用するためには、高電圧を発生させるために複数のセルを直列に連結する必要がある。自動車用や家庭の定置用燃料電池は、各単位セルを縦方向に連結するスタック構造として形成されることが一般的であるが、携帯機器用ダイレクトメタノール固体電解質型燃料電池の場合には、携帯機器の厚さの制約から平面内で連結されることが多い。

従来の燃料電池では、固体電解質膜の両面に燃料極及び酸化剤極がそれぞれ形成された単位セルを複数個平面上に配置し、各セルの燃料極と酸化剤極に集電体を接触させ、この集電体を介して、各セルを相互に電氣的に接続することが行われていた。具体的には、各セルの一番外側に燃料極エンドプレート及び酸化剤極エンドプレートを設け、ボルトとナットなどの締結部品によって燃料極及び酸化剤極に一定の圧力を加えることにより、燃料極及び酸化剤極を電氣的に集電体に接触させ、所望の出力特性を得ていた。燃料は外部の燃料容器から燃料極エンドプレートに設けられた燃料の流入部及び排出部を介して供給または排出される。

従来の携帯機器用の固体電解質型燃料電池としては、例えば、特表 2000-513480 号公報、特開平 8-167416 号公報、特開平 8-162123 号公報、特開平 8-106915 号公報に記載されたものがある。従来の携帯機

器用の固体電解質型燃料電池の構成の一例を図2に示す。

図2に示す従来の固体電解質型燃料電池は、燃料極102と、酸化剤極108と、燃料極102及び酸化剤極108の間に挟まれた固体電解質膜114と、から構成されている。

燃料極102は、基体104と、基体104の一方の面上に配置された触媒層106と、基体104の他方の面上に配置された燃料極側集電体421と、を備えている。酸化剤極108は、基体110と、基体110の一方の面上に配置された触媒層112と、基体110の他方の面上に配置された燃料極側集電体423と、を備えている。

燃料極102と酸化剤極108とは、双方の触媒層106、112が固体電解質膜114を介して対向するように、配列されている。燃料電池が生成した電気は燃料極側集電体421及び酸化剤極側集電体423を介して出力される。

燃料極側集電体421には燃料極側エンドプレート120が、酸化剤極側集電体423には酸化剤極側エンドプレート122がそれぞれ接して配置されており、燃料極側エンドプレート120及び酸化剤極側エンドプレート122はボルト及びナットからなる締結部品13を介して相互に連結されている。このように、締結部品13を介して燃料極側エンドプレート120及び酸化剤極側エンドプレート122を連結させることにより、燃料極側集電体421及び酸化剤極側集電体423に一定の圧力が加わり、燃料極側集電体421と基体104とが、さらに、酸化剤極側集電体423と基体110とが機械的に十分な密着力で接触する。

この場合、燃料極側エンドプレート120及び酸化剤極側エンドプレート122は十分な剛性を有している必要があり、剛性が不十分であると、締結部品13を介して圧力をかけたときに、これらのエンドプレート120、122がたわんでしまう。エンドプレート120、122がたわむと、燃料極側集電体421、423と基体104、110との間の機械的な接触が不十分になり、燃料電池の内部抵抗が大きくなってしまう。この結果、燃料電池の出力が低下するという問題が未解決のまま残っていた。

このように、燃料極102及び酸化剤極108にエンドプレート421、423を設け、ボルトとナットなどの締結部品13を介して、燃料極側集電体421、

4 2 3と基体1 0 4、1 1 0とを十分に密着させる従来の燃料電池においては、内部抵抗を小さくするため、エンドプレート4 2 1、4 2 3に十分な剛性が必要とされる。各構成部材の密着が不十分であると、燃料電池の内部抵抗が増加し、燃料電池の出力が低下する。

例えば、エンドプレート4 2 1、4 2 3にベークライトやステンレス等を用いた場合に、エンドプレート4 2 1、4 2 3に十分な剛性を与えるためには、エンドプレート4 2 1、4 2 3は通常1 mm以上の厚さが必要になり、燃料電池を薄型化及び軽量化することができなくなる。

一方、エンドプレート4 2 1、4 2 3を例えば0. 5 mm以下に薄くすると、エンドプレート4 2 1、4 2 3の剛性が低下し、締結部品1 3を介してエンドプレート4 2 1、4 2 3を相互に締結した時に、エンドプレート4 2 1、4 2 3にたわみが生じる。この結果、燃料電池内部の燃料極、酸化剤極及び固体電解質膜相互間の接触圧力が低下し、燃料電池の出力が低下する。

また、携帯機器に用いる燃料電池として、例えば、特開2 0 0 1-2 8 3 8 9 2号公報は、平面内でセルを連結することにより構成した燃料電池を記載している。この燃料電池は、図2に示した燃料電池を単位セルとして、複数個の単位セルを同一平面上に並べて連結したものである。この燃料電池においては、燃料極及び酸化剤極のエンドプレートは各1枚に一体化されており、エンドプレートをボルト及びナットで相互に締結し、単位セルの構成要素相互間の電氣的接触が確保されている。

このように、従来の燃料電池においては、複数個の単位セルを用いて燃料電池を形成する場合にも、エンドプレートと、ボルト及びナットその他の締結部品とを用いて、単位セルの構成要素相互間を密着させる必要があった。

しかしながら、燃料電池を携帯機器に用いる場合、薄型化、小型化及び軽量化が要求される。例えば、携帯電話は1 0 0 g程度と軽量であるため、燃料電池の重量もグラム単位で軽く、また、ミリ単位で薄くする必要があるが、従来の燃料電池では、以上に述べたように、小型軽量化をめざすと内部抵抗が増加し、出力が低下するという問題点があった。

上記のように、従来の燃料電池は、燃料極及び酸化剤極に接してエンドプレー

トを配置し、ボルト及びナットその他の締結部品を介して、燃料極及び酸化剤極の構成要素相互間を十分に密着させていたため、燃料電池を薄型化、軽量化することができないという問題点を有していた。

また、エンドプレートを薄くすることにより、従来の燃料電池を薄型化、軽量化しようとする、燃料電池の各構成部材相互間の密着が不十分になるため、内部抵抗が増加し、出力が低下するという問題点を有していた。

特に、従来の燃料電池では、携帯機器に用いるために十分な薄型化、小型化及び軽量化と、出力向上との両立が困難であるという問題点を有していた。

従来の燃料電池における上記の問題点に鑑み、本発明の目的は、高出力かつ薄型、小型軽量の燃料電池を提供することにある。

また、本発明の別の目的は、携帯機器などに用いるために十分に小型軽量で、かつ、出力密度の高い燃料電池を提供することにある。

発明の開示

本発明によれば、基体と、前記基体の一方の表面上に配置された集電体と、前記基体の他方の表面上に配置された触媒層と、からなる燃料電池用電極であって、前記集電体と前記基体とは接着されていることを特徴とする燃料電池用電極が提供される。

本発明に係る燃料電池用電極は、基体と集電体とが接着された構成を有している。「接着」とは、基体と集電体とが、例えば、エンドプレート及び締結部品を介して締結されることなく、十分に密着している状態をいう。具体的には、例えば、基体と集電体とが、それらの界面に形成された接着層を介して接着され、ろう材を介して接着され、基体と集電体の両方に親和性を有する接着剤を介して接着され、あるいは、それらの界面において合金を形成させることにより接着されていることを指す。また、様々な化学結合を起こすことによって、基体と集電体とを接着させることもできる。

基体と集電体とを接着することにより、基体と集電体との間の密着性が良好に保たれ、基体と集電体とを電氣的に接続することができる。従って、本発明に係る燃料電池用電極によれば、従来、基体と集電体との締結に必要とされていたエ

ンドプレート及びボルトとナットなどの小型化を阻害する部材の使用はもはや不要となる。このため、本発明に係る燃料電池用電極によれば、燃料電池を薄型、小型軽量化することができる。

なお、本発明に係る燃料電池用電極においては、燃料極または酸化剤極の集電体の外側に従来用いられていたエンドプレートなどの小型化を阻害する部材は設けないが、小型化を阻害しない部材、例えば、包装部材などは必要に応じて適宜設けることができる。

さらに、従来はエンドプレートと締結部材を用いていたため、集電体はたわみが生じない程度の厚さを有している必要があったが、本発明に係る燃料電池用電極においては、エンドプレート及び締結部材の使用が不要となるため、集電体自体も薄型化することができる。

本発明に係る燃料電池用電極において、基体は炭素を主成分とすることが好ましい。

基体の主成分を炭素とすることにより、基体の導電性を向上させることができる。さらに、集電体を構成する材料の選択によって、金属炭化物の形成による基体と集電体との接着が可能になるため、基体と集電体との間の電氣的接触をさらに良好にすることができる。

また、本発明に係る燃料電池用電極において、集電体は炭化物を形成し得る元素を含むことが好ましい。

これにより、基体を炭素を主成分として構成した際に、集電体と基体との間の親和性を向上させることができる。従って、集電体と基体との間の密着性を高めることができるため、これらの間の電氣的接触を高めることができる。さらに、このような燃料電池用電極を燃料電池に用いることにより、燃料電池の出力を高めることができる。

基体と集電体とを金属炭化物を形成させることにより接着させる場合、集電体は、Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo、W、Mn、Fe、Co、Ni、Al及びCから選択される一または二以上の元素を含むことが好ましい。

これにより、集電体は基体との界面において炭化物を形成することができるため、基体と集電体との間の密着性をさらに高めることができる。

集電体は導電性金属またはその合金から構成することができる。

これにより、集電体の接触抵抗を低下させ、集電効率を向上させることができる。従って、本燃料電池用電極を燃料電池に使用した際にその出力を向上させることができる。

本発明に係る燃料電池用電極において、集電体は、Au、Ag、Cu、Ptから選択される一または二以上の元素を含むことが好ましい。

集電体がAu、Ag、Cuから選択される元素を含むことにより、集電体の電気抵抗を低下させることができるため、集電体をより薄型化することができる。従って、燃料電池用電極をさらに薄型、小型軽量化することができる。また、集電体がAu、Ag、Ptから選択される元素を含むことにより、集電体は貴金属の性質に近くなるため、集電体の耐食性を向上させることができる。

本発明に係る燃料電池用電極においては、集電体は金属板または金属メッシュから構成することができる。

集電体として金属板を用いる場合、燃料または酸化剤を燃料極または酸化剤極の基体へと導く導入路が金属板に設けられていることが好ましい。例えば、表面に貫通孔が設けられた金属板、多孔質金属板、線状の孔が設けられた金属板として構成することができる。また、集電体として金属メッシュを用いる場合、例えば、金メッシュその他の多孔質金属メッシュなどを用いることができる。これにより、基体と集電体との間の気体や液体の拡散をさらに促進することができる。さらに、集電体を軽量化することもできるため、本燃料電池用電極を燃料電池に用いた際にも、燃料電池の軽量化が可能である。

本発明に係る燃料電池用電極においては、集電体の厚さを0.05mm以上、1mm以下とすることが好ましい。

集電体の厚さを0.05mm以上とすることにより、集電体の厚み方向の電気抵抗を好適に低下させることができる。また、集電体の厚さを1mm以下とすることにより、集電体をより薄型化、小型軽量化することができる。従って、このような構成の燃料電池用電極を燃料電池に用いることにより、燃料電池の出力を向上させ、さらに、薄型化、小型軽量化することができる。

本発明によれば、燃料極と、酸化剤極と、前記燃料極及び前記酸化剤極の間に

挟持された固体電解質膜とを備える燃料電池であって、前記燃料極または前記酸化剤極は上述の燃料電池用電極からなるものであることを特徴とする燃料電池が提供される。

本発明に係る燃料電池は、燃料極及び酸化剤極における基体と集電体とがそれぞれ接着されているため、エンドプレート及び締結部品を用いなくても、基体と集電体との間の密着性を良好に維持することができ、基体と集電体との間の電気的な接触を良好に維持することができる。従って、燃料電池をより薄型化、小型軽量化することができる。

本発明に係る燃料電池は種々の形態をとることができる。例えば、平面型の燃料電池あるいは円筒型の燃料電池として構成することができる。

本発明に係る燃料電池において、燃料極が上述の燃料電池用電極からなり、燃料は燃料電池用電極の集電体の表面に直接供給される構成とすることができる。

本発明に係る燃料電池を構成する燃料極においては、集電体上に基体が接着され、該基体上に触媒層が形成されている。このような構成によって、エンドプレート及び締結部品を用いなくても、燃料極における基体と集電体との間の密着性を良好に維持することができるため、基体と集電体との間の電気的な接触を良好に維持することができる。

また、本発明に係る燃料電池においては、燃料極の集電体の表面に直接燃料が供給される。

燃料極の集電体の表面への燃料の直接供給は、例えば、燃料極の集電体上に燃料容器や燃料供給部を設けることにより、達成することができる。これにより、エンドプレートその他の部材を介さずに、燃料極の集電体に燃料を供給することができる。

従って、本発明に係る燃料電池は、エンドプレート等の小型化を阻害する部材を介さずに、燃料極の集電体の表面に直接燃料が供給されるため、より薄型、より小型軽量に形成することができ、かつ、出力特性に優れる。

なお、集電体を板状に構成する場合には、導入孔を設けることが好ましい。これにより、集電体の表面から燃料をより効率的に供給することができる。また、本発明に係る燃料電池には、包装部材などの小型化を阻害しない部材を適宜用い

ることができる。

本発明に係る燃料電池においては、燃料極が上述の燃料電池用電極からなり、燃料極に燃料を供給するための燃料容器または燃料流路が燃料電池用電極の集電体の表面に接して設けられている構成を選択することができる。

本発明に係る燃料電池を構成する燃料極においては、集電体上に基体が接着され、該基体上に触媒層が形成されているため、電気的な接触が良好に維持されている。また、本発明に係る燃料電池においては、燃料極に燃料を供給するための燃料容器または燃料流路などの燃料供給体が、エンドプレートなどの小型化を阻害する因子を介さずに、燃料極の集電体の表面に接して設けられており、燃料極の集電体の表面に直接燃料が供給される。従って、本発明に係る燃料電池は、より薄型、小型軽量であり、かつ、出力特性に優れている。

なお、集電体が板状である場合、集電体の表面に貫通孔やストライプ状の導入路などを設けることができる。これにより、集電体の表面から燃料をより効率よくとりこませ、燃料極の基板に導くことができる。また、本発明に係る燃料電池には、包装部材などの燃料電池の小型化を阻害しない部材を適宜用いることができる。

本発明に係る燃料電池においては、酸化剤極が燃料電池用電極からなり、酸化剤は燃料電池用電極の集電体の表面に直接供給される構成とすることができる。

本発明に係る燃料電池を構成する酸化剤極においては、集電体上に基体が接着され、該基体上に触媒層が形成されている。これによって、エンドプレート及び締結部品を用いなくても、酸化剤極における基体と集電体との間の密着性を良好に維持することができるため、基体と集電体との間の電気的な接触を良好に維持することができる。また、本発明に係る燃料電池においては、酸化剤極の集電体の表面に直接酸化剤が供給される。ここで、酸化剤が直接供給されるとは、酸化剤極の集電体の表面から直接酸化剤ガスがとりこまれることをいい、酸化剤極の集電体に、エンドプレートやセパレータなどを介さずに、酸化剤が供給されることをいう。

従って、本発明に係る燃料電池は、エンドプレート等の小型化を阻害する部材を介さずに、酸化剤極の集電体の表面に直接酸化剤が供給されるため、より薄型、

小型軽量であり、かつ、出力特性に優れる。

なお、集電体が板状である場合には、集電体に導入孔を設けることができる。これにより、酸化剤を集電体の表面からより効率よくとりこませることができる。また、本発明に係る燃料電池には、包装部材などの小型化を阻害しない部材を適宜用いることができる。

本発明に係る燃料電池においては、酸化剤極を構成する燃料電池用電極の集電体の表面は直接大気と接する構成とすることができる。

本発明に係る燃料電池を構成する酸化剤極においては、集電体上に基体が接着され、該基体上に触媒層が形成されているため、電氣的な接触が良好に維持されている。従って、エンドプレートなどの小型化を阻害する因子を介さずに、燃料極の集電体の表面に直接大気中の酸化剤が供給される。従って、本発明に係る燃料電池は、より薄型、小型軽量であり、かつ、出力特性に優れている。

本発明に係る燃料電池においては、集電体の表面が包装部材により包装されていることが好ましい。

本発明に係る燃料電池においては、燃料極または酸化剤極の基体と集電体とが接着されているため、基体と集電体との間の電氣的接触が良好に保たれている。従って、集電体の表面を包装部材により包装することにより、薄型、小型軽量で出力特性に優れた燃料電池とすることができ、例えば、エンドプレートや締結部品などの小型化を阻害する部材を用いて、基体と集電体との間の電氣的接触を確保する必要がない。

本発明に係る燃料電池においては、例えば、燃料極には有機液体燃料を供給することができる。

本発明に係る燃料電池においては、燃料極または酸化剤極の集電体と基体とが接着されている。従って、有機液体燃料の供給容器、供給流路などが必要な場合についても、エンドプレートなどを介さずに、これらを直接燃料極の集電体に接触させて設けることができる。従って、燃料電池をより薄型、小型軽量のものとすることができる。

本発明は、隣接する燃料電池セルを接続電極を介して相互に接続することにより形成された複数の燃料電池セルからなる燃料電池であって、燃料電池セルは

上述の燃料電池からなるものであることを特徴とする燃料電池を提供する。

上述の本発明に係る燃料電池（燃料電池セル）においては、燃料極または酸化剤極の集電体と基体とが接着されているため、より薄型、小型軽量であり、かつ、出力特性に優れている。このような燃料電池（燃料電池セル）を複数個直列または並列またはこれらの組み合わせを用いて単一の燃料電池を構成することにより、より薄型、小型軽量であり、かつ、出力特性に優れた燃料電池を提供することができる。

複数個の燃料電池セルを組み合わせて一個の燃料電池を形成する場合、各燃料電池セルはそれぞれ固体電解質膜を有するものとして形成することも可能であるが、複数個の燃料電池セルの各々における固体電解質膜を1個の共通の固体電解質膜として形成することもできる。

このように、固体電解質膜を共通化することにより、複数個の燃料電池セルを組み合わせて一個の燃料電池を形成する場合の部品点数の節減及び製造工程の単純化を図ることができる。

本発明は、円筒形の燃料容器と、複数個の燃料電池セルと、からなる燃料電池であって、燃料電池セルは上述の燃料電池からなり、燃料電池セルの各々の燃料極は燃料容器の外側表面及び内側表面の一方の上に、あるいは、双方の上に配列されていることを特徴とする燃料電池を提供する。

この燃料電池は、相互に隣接する前記燃料電池セルを相互に接続する接続電極をさらに有することができる。

また、この燃料電池においても、複数個の燃料電池セルの各々における固体電解質膜は1個の共通の固体電解質膜として形成することができる。

本発明は、基体と、前記基体の一方の表面上に配置された集電体と、前記基体の他方の表面上に配置された触媒層と、からなる燃料電池用電極の製造方法であって、固体高分子電解質を含む粒子及び触媒担持炭素粒子を含有する塗布液を基体の一方の面に塗布して触媒層を形成する第一の工程と、前記基体の他方の面と集電体とを接着する第二の工程と、を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法を提供する。

本発明に係る燃料電池用電極の製造方法は、基体と集電体とを接着させる工程

を含むため、基体と集電体との間の密着性を高めることができる。この結果、エンドプレートや締結部品を必要とせずに、基体と集電体との間の電氣的接触を高めることができる。従って、本発明に係る燃料電池用電極の製造方法によれば、高出力かつ薄型、小型軽量化の燃料電池を製造することができる。

本発明に係る燃料電池用電極の製造方法においては、前記第二の工程は、前記基体と前記集電体とを熱圧着によって接着する工程からなるものとすることができる。

例えば、基体が炭化物を形成しうる金属を含み、集電体が炭素を主成分として含む場合、基体と集電体とを熱圧着することによって、密着させることが可能である。これにより、基体と集電体との間の電氣的接触を高めることができる。

本発明に係る燃料電池用電極の製造方法においては、前記第二の工程は、前記基体と前記集電体とをロウ付けによって接着する工程からなるものとすることができる。

例えば、基体が炭素を主成分として含み、集電体が炭化物を形成しにくい金属を含む場合、基体と集電体とをロウ付けすることによって、集電体と基体とをより密着させることができる。これにより、基体と集電体との間の電氣的接触を高めることができる。

本発明に係る燃料電池用電極の製造方法においては、前記第二の工程におけるロウ付けは、P d、F e、T i、N i、Z r、C d、A lから選択される一または二以上の元素を含むロウ材を用いて行われることが好ましい。

これらの元素を含むロウ材を用いることにより、基体と集電体とをより強く接着させることができる。

本発明に係る燃料電池用電極の製造方法においては、前記基体は炭素を主成分として含有し、前記集電体は金属を含み、前記第二の工程は、前記基体と前記集電体との間に金属炭化物からなる接着層を形成する工程からなるものとすることができる。

例えば、基体が炭素を主成分として含み、集電体が炭化物を形成しにくい金属を含む場合、基体と集電体との間に炭化物を形成しうる金属を含む接着層を設けることにより、この接着層が基体及び集電体の双方に対して高い親和性を有する

ため、接着層を介して基体と集電体とをより密着させることができる。この結果、基体と集電体との間の電氣的接触を高めることができる。

本発明に係る燃料電池用電極の製造方法においては、接着層は、Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo、W、Mn、Fe、Co、Ni、Alから選択される一または二以上の元素を含むものとして構成とすることができる。

これらの元素は、炭素と反応して炭化物を形成し得る金属として知られている。このため、これらの元素を含む接着層を設けることにより、基体が炭素を主成分として含む場合、基体と接着層との間の親和力をさらに高めることができる。従って、接着層を介して基体と集電体とをより密着させることができ、ひいては、基体と集電体との間の電氣的接触を高めることができる。

本発明は、上述の燃料電池用電極の製造方法によって燃料電池用電極を形成する工程と、固体電解質膜と前記燃料電池用電極とを当接させた状態で前記固体電解質膜と前記燃料電池用電極とを圧着することにより、前記固体電解質膜と前記燃料電池用電極とを接合する工程と、を含む燃料電池の製造方法を提供する。

本発明に係る燃料電池の製造方法は、燃料電池用電極を製造する工程を含むため、燃料極または酸化剤極を構成する基体と集電体とを接着する工程を含む。従って、エンドプレートや締結部材などを必要とせずに基体と集電体との間の密着性を高めることができ、その結果として、高出力かつ薄型、小型軽量の燃料電池の製造を可能にする燃料電池の製造方法を提供することができる。また、本製造方法によれば、エンドプレートなどを用いて基体、集電体及び触媒層を相互に締結する工程を必要としないため、製造工程を簡素化することができる。

図面の簡単な説明

図1は、本発明の第一の実施例に係る燃料電池の構造を示す模式的な断面図である。

図2は、従来の燃料電池の一例を示す斜視図である。

図3は、本発明の第二の実施例に係る燃料電池の構造を示す模式的な断面図である。

図4は、本発明の第三の実施例に係る燃料電池の構造を示す模式的な断面図で

ある。

図5は、本発明の第四の実施例に係る燃料電池の構造を示す模式的な斜視図である。

(符号の説明)

- 8 外部出力端子
- 9 外部出力端子
- 100 燃料電池
- 101 単セル構造
- 102 燃料極
- 104 基体
- 106 触媒層
- 108 酸化剤極
- 110 基体
- 112 触媒層
- 114 固体電解質膜
- 421 燃料極側集電体
- 423 酸化剤極側集電体
- 425 燃料容器
- 427 セル間接続電極
- 429 シール
- 431 パッケージ

好ましい実施例の詳細な説明

以下に、本発明に係る燃料電池用電極及びそれを用いた燃料電池について、図面を参照して説明する。

(第1の実施例)

図1は本発明の第一の実施例に係る燃料電池100の単セル構造101を模式的に示した断面図である。

本実施例に係る燃料電池100は単一の単セル構造101を有しているが、複

数の単セル構造 101 を有するように構成することも可能である。

図 1 に示すように、単セル構造 101 は、燃料極 102 と、酸化剤極 108 と、燃料極 102 及び酸化剤極 108 の間に挟み込まれた固体電解質膜 114 と、から構成されている（燃料極 102 と酸化剤極 108 とはあわせて「触媒電極」と呼ばれる）。

燃料極 102 は、基体 104 と、基体 104 の一方の表面上に配置された触媒層 106 と、基体 104 の他方の表面上に配置された燃料極側集電体 421 と、から構成されている。また、酸化剤極 108 は、基体 110 と、基体 110 の一方の表面上に配置された触媒層 112 と、基体 110 の他方の表面上に配置された燃料極側集電体 423 と、から構成されている。

触媒層 106 及び 112 は、例えば、触媒を担持した炭素粒子と固体高分子電解質の微粒子とを含むことができる。基体 104 及び 110 の表面は撥水处理しておくこともできる。

本実施例に係る燃料電池 100 は、単セル構造 101 に加えて、燃料容器 425 と二つの外部出力端子 8、9 とを備えている。

燃料容器 425 は、燃料極 102 の燃料極側集電体 421 に接して配置されており、燃料極 102 に対して燃料を供給する。酸化剤極 108 には、空気中の酸素が酸化剤として供給される。

燃料電池 100 により発電された電力は、外部出力端子 8、9 を介して取り出される。

燃料電池を携帯機器に応用する場合、エネルギー密度や出力密度が大きいという基本的な性能に加えて、燃料電池が小型で薄く、かつ、軽量であるということが要求される。そこで、本実施例においては、基体 104、110 にそれぞれ集電体 421、423 となる導電性材料を接着することによって、基体 104、110 と集電体 421、423 とを一体化することを特徴としている。このように構成することによって、集電体 421、423 となる導電性材料の厚さが 1 mm 以下、さらには、0.1 mm 以下と非常に薄くても、集電体 421、423 は基体 104、110 と電氣的に良好なコンタクトを取ることができる。従って、単セル構造 101 の厚さを、例えば、1 mm 以下の薄い構造とすることができ、優

れた出力特性を発揮させることができる。

燃料極側集電体 4 2 1 及び酸化剤極側集電体 4 2 3 の材質としては、金属や炭素などの導電性物質を用いることができる。

燃料極側集電体 4 2 1 及び酸化剤極側集電体 4 2 3 は、例えば、Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo、W、Mn、Fe、Co、Ni、Al、C から選択される一または二以上の元素を含むことができる。これらの元素は炭化物を形成し得るため、基体 1 0 4、1 1 0 との好適な親和性を有すると考えられる。

また、燃料極側集電体 4 2 1 及び酸化剤極側集電体 4 2 3 に上記の元素の炭化物を用いる場合には、炭化物の電気抵抗が比較的小さいTi、Zr、Hf、V、Nb、Taの中から選択することが好ましい。

また、燃料極側集電体 4 2 1 及び酸化剤極側集電体 4 2 3 は、例えば、Au、Ag、Cu、Pt から選択される一または二以上の元素を含むことができる。Au、Ag、Cu は電気抵抗が比較的低いため、集電体 4 2 1、4 2 3 をより薄くすることができる。また、Au、Ag、Pt は貴金属であるため、これらを用いることにより、集電体の耐食性を高めることができる。

燃料極側集電体 4 2 1 または酸化剤極側集電体 4 2 3 としては、燃料または空気（特に、酸素）を通過させるための孔が形成された薄板を用いることができる。例えば、多孔質金属板を用いることができる。また、薄板の代わりに金属メッシュを用いることもできる。金属メッシュを用いることにより、燃料または酸化剤を燃料極側集電体 4 2 1 または酸化剤極側集電体 4 2 3 の表面から直接供給することができるため、燃料電池 1 0 0 をより薄型化かつ小型軽量化することができる。

燃料極側集電体 4 2 1 及び酸化剤極側集電体 4 2 3 として多孔質金属板または金属メッシュを用いる場合、その孔径は、例えば、0.1 mm 以上 5 mm 以下とすることができる。孔径をこの範囲に選定することにより、燃料液体及び燃料気体の良好な拡散を維持することができる。

また、燃料極側集電体 4 2 1 及び酸化剤極側集電体 4 2 3 の開孔率（集電体の全表面積に対する孔の全面積の割合）は、例えば、10%以上とすることができる。開孔率を10%以上とすることにより、燃料液体及び燃料気体の良好な拡散

を維持することができる。また、開孔率は、例えば、70%以下とすることが好ましい。開孔率を70%以下とすることにより、良好な集電作用を維持することができる。さらに、開孔率は、例えば、30%以上60%以下とすることができる。開孔率をこの範囲に設定することにより、燃料液体及び燃料気体のさらに良好な拡散を維持し、かつ、良好な集電作用を維持することができる。

燃料極側集電体421及び酸化剤極側集電体423の厚さは、例えば、1mm以下とすることができる。集電体421、423の厚さを1mm以下とすることによって、単セル構造101を好適に薄型軽量化することができる。また、集電体421、423の厚さを0.5mm以下とすることにより、単セル構造101をさらに小型軽量化することができ、携帯機器に対してさらに好適に用いることができる。例えば、集電体421、423の厚さを0.1mm以下とすることもできる。

なお、燃料極側集電体421と酸化剤極側集電体423とは、同じ物質からなるものとしてもよく、あるいは、異なる物質からなるものとすることもできる。

基体104、110としては、カーボンペーパー、カーボンの成形体、カーボンの焼結体、焼結金属、発泡金属などの多孔性基体を用いることができる。

また、基体104、110の撥水处理にはポリテトラフルオロエチレンなどの撥水剤を用いることができる。

燃料極102の触媒としては、例えば、白金、ロジウム、パラジウム、イリジウム、オスミウム、ルテニウム、レニウム、金、銀、ニッケル、コバルト、リチウム、ランタン、ストロンチウム、イットリウムを単独または二種類以上組み合わせて用いることができる。

一方、酸化剤極108の触媒としては、燃料極102の触媒と同様のものが用いることができ、上記の例示物質を使用することができる。なお、燃料極102及び酸化剤極108の触媒は同じものを用いてもよく、あるいは、異なるものを用いてもよい。

触媒を担持する炭素粒子としては、例えば、アセチレンブラック（デンカブラック（電気化学社製：登録商標）、XC72（Vulcan社製）など）、ケッチェンブラック、アモルファスカーボン、カーボンナノチューブ、カーボンナノホ

ーンを用いることができる。

炭素粒子の粒径は、例えば、 $0.01\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ 以下が好ましく、 $0.02\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $0.06\text{ }\mu\text{m}$ 以下がさらに好ましい。

本実施例における燃料極102及び酸化剤極108の構成成分である固体高分子電解質は、これらの触媒電極の表面において、触媒を担持した炭素粒子と固体電解質膜114とを電氣的に接続するとともに、触媒表面に有機液体燃料を到達させる役割を有しており、水素イオン伝導性や水移動性が要求される。さらに、燃料極102の構成成分である固体高分子電解質にはメタノールその他の有機液体燃料の透過性が求められ、酸化剤極108の構成成分である固体高分子電解質には酸素透過性が求められる。

固体高分子電解質はこうした要求を満たすために、水素イオン伝導性や、メタノールその他の有機液体燃料の透過性に優れる材料が選定される。具体的には、スルホン基、リン酸基などの強酸基や、カルボキシル基などの弱酸基などの極性基を有する有機高分子が固体高分子電解質として好ましく用いられる。こうした有機高分子としては、例えば、次のようなものを用いることができる。

(1) スルホン基含有パーフルオロカーボン (ナフィオン (デュポン社製)、アシプレックス (旭化成社製) など)

(2) カルボキシル基含有パーフルオロカーボン (フレミオンS膜 (旭硝子社製) など)

(3) ポリスチレンスルホン酸共重合体、ポリビニルスルホン酸共重合体、架橋アルキルスルホン酸誘導体、フッ素樹脂骨格及びスルホン酸からなるフッ素含有高分子などの共重合体

(4) アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸のようなアクリルアミド類とn-ブチルメタクリレートのようなアクリレート類とを共重合させて得られる共重合体

また、極性基が結合する対象の高分子としては、次のようなものも用いることもできる。

(1) ポリベンズイミダゾール誘導体、ポリベンズオキサゾール誘導体、ポリエチレンイミン架橋体、ポリサイラミン誘導体、ポリジエチルアミノエチルポリス

チレン等のアミン置換ポリスチレン、ジエチルアミノエチルポリメタクリレート等の窒素置換ポリアクリレート等の窒素または水酸基を有する樹脂

(2) シラノール含有ポリシロキサン、ヒドロキシエチルポリメチルアクリレートに代表される水酸基含有ポリアクリル樹脂

(3) パラヒドロキシポリスチレンに代表される水酸基含有ポリスチレン樹脂

また、上記の高分子に対して、架橋性の置換基、例えば、ビニル基、エポキシ基、アクリル基、メタクリル基、シンナモイル基、メチロール基、アジド基、ナフトキノンジアジド基を導入することも可能である。

燃料極 102 及び酸化剤極 108 における上記の固体高分子電解質としては、同一のものを用いてもよく、あるいは、異なるものを用いることもできる。

固体電解質膜 114 は、燃料極 102 と酸化剤極 108 とを隔てるとともに、両者の間で水素イオンを移動させる役割を有する。このため、固体電解質膜 114 は、水素イオンの透過性が高い膜であることが好ましい。また、化学的に安定であって、機械的強度が高いことが好ましい。

固体電解質膜 114 を構成する材料としては、スルホン基、リン酸基、ホスホン基、ホスフィン基などの強酸基や、カルボキシル基などの弱酸基などの極性基を有する有機高分子が好ましく用いられる。こうした有機高分子としては、例えば、次のものを用いることができる。

(1) スルホン化ポリ(4-フェノキシベンゾイル-1,4-フェニレン)、アルキルスルホン化ポリベンゾイミダゾールなどの芳香族含有高分子

(2) ポリスチレンスルホン酸共重合体、ポリビニルスルホン酸共重合体、架橋アルキルスルホン酸誘導体、フッ素樹脂骨格及びスルホン酸からなるフッ素含有高分子などの共重合体

(3) アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸のようなアクリルアミド類と n -ブチルメタクリレートのようなアクリレート類とを共重合させて得られる共重合体

(4) スルホン基含有パーフルオロカーボン(ナフィオン(デュポン社製:登録商標)、アシプレックス(旭化成社製:登録商標))

(5) カルボキシル基含有パーフルオロカーボン(フレミオンS膜(旭硝子社製))

このうち、スルホン化ポリ（４－フェノキシベンゾイル－１，４－フェニレン）、アルキルスルホン化ポリベンゾイミダゾールなどの芳香族含有高分子を選択した場合、有機液体燃料の透過を抑制することができ、クロスオーバーによる電池効率の低下を抑えることができる。

また、本実施例に係る燃料電池１００に用いる燃料としては、例えば、水素を用いることができる。また、天然ガス、ナフサなどを燃料とする改質水素を用いることもできる。あるいは、例えば、メタノールなどの液体燃料を直接供給することもできる。また、酸化剤としては、例えば、酸素、空気などを用いることができる。

本実施例に係る燃料電池１００における燃料の供給は、例えば、図１に示したように、燃料極１０２に接着された燃料容器４２５を介して行うことができる。燃料容器４２５の燃料極側集電体４２１と接する面には複数個の孔が設けられており、これらの孔を介して燃料が燃料極側集電体４２１に供給される。

燃料容器４２５に燃料供給口を設け、必要に応じて、燃料供給口を介して燃料を燃料容器４２５に注入する構成とすることもできる。燃料は燃料容器４２５に蓄えてもよく、または、随時燃料容器４２５に輸送される構成とすることもできる。すなわち、燃料の供給は、燃料容器４２５に限らず、燃料供給流路を設けることによっても行うことができる。例えば、燃料カートリッジから燃料容器４２５に輸送される構成とすることもできる。

本実施例に係る燃料電池１００及び燃料電池１００の構成要素である燃料電池用電極１０２、１０８の製造方法は特に限定されない。以下に、製造方法の一例を説明する。

燃料極側集電体４２１と基体１０４並びに酸化剤極側集電体４２３と基体１１０とを接着する方法として、例えば、高温下での熱圧着、ロウ付け、接着層を挟み込ませることによる接着を選択することができる。

例えば、基体１０４または基体１１０が主成分として炭素を含み、燃料極側集電体４２１または酸化剤極側集電体４２３が、例えば、Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo、W、Mn、Fe、Co、Ni、Al、Cから選択される一または二以上の元素を含む場合、これらの物質は炭化物を形成しうするため、

摂氏100以上の温度で熱処理することにより、基体104または基体110と接着させることができる。

また、基体104または基体110が主成分として炭素を含み、燃料極側集電体421または酸化剤極側集電体423が、例えば、Au、Ag、Cu、Ptのような貴金属からなるものである場合、あるいは、炭素系材料と化学的結合性の弱い材料からなるものである場合には、基体104、110と集電体421、423との間に接着層を設けることによって、基体104、110と集電体421、423との間の接着性を向上させることができる。

接着層は、例えば、チタンやクロムなどの炭化物を形成しうる金属を主成分として含むことができる。

集電体421、423と基体104、110とを接着層を介して接着する方法として、例えば、集電体421、423及び基体104、110の一方または双方の表面にこれらのいずれにも親和性を有する金属を蒸着し、蒸着された金属を介して、集電体421、423と基体104、110とを当接させ、熱圧着させる方法などを用いることができる。

このように、集電体421、423となる導電性金属材料と基体104、110とを接着させることによって、図2に示した従来の燃料電池のようにエンドプレート120、122及び締結部品13による機械的圧力をかけなくても、両者の間に良好な電氣的な接触を確保することができる。

また、接着層を設ける方法に代えて、ろう付けによる接着方法を用いることもできる。

ろう付けに用いるろう材は、燃料極側集電体421または酸化剤極側集電体423に用いる金属との親和性が良好な物質や、比較的低融点な金属を含むことができる。ろう材としては、例えば、Pd、Cu、Fe、Ti、Ni、Zr、Cd、Alやこれらの合金の中から、基体104、110及び集電体421、423の材質に合わせて適宜選択することができる。また、例えば、Cu-Ti系、Cu-Ti-Zr系、Ti-Ni系、Ni-Cr-Si系、Ni-Cr-B-Si-Fe系、Pd-Ni-Mn系、Pd-Ni-Cu-Mn系などのろう材から、基体104、110及び集電体421、423の材質に合わせて適宜選択すること

ができる。

以上のように、燃料極側集電体421と基体104とを、さらに、酸化剤極側集電体423と基体110とをそれぞれ接着することにより、集電体421、423の厚さが例えば0.1mm以下と薄い場合においても、基体104、110と集電体421、423との間の良好な密着性が維持されるため、内部抵抗の上昇を抑制することができる。

燃料極102及び酸化剤極108の触媒の炭素粒子への担持は、一般的に用いられている含浸法によって行うことができる。

次に、触媒を担持させた炭素粒子と固体電解質とを溶媒に分散させ、ペースト状とした後、これを基体104、110に塗布し、さらに、乾燥させることによって燃料極102及び酸化剤極108を得ることができる。

ここで、炭素粒子の粒径は、例えば、0.01 μ m以上0.1 μ m以下とする。触媒粒子の粒径は、例えば、1nm以上10nm以下とする。また、固体高分子電解質粒子の粒径は、例えば、0.05 μ m以上1 μ m以下とする。炭素粒子と固体高分子電解質粒子とは、例えば、重量比で2:1乃至40:1の範囲で用いられる。また、ペースト中の水と溶質との重量比は、例えば、1:2乃至10:1程度とする。

基体104、110へのペーストの塗布方法については特に制限はないが、例えば、刷毛塗り、スプレー塗布またはスクリーン印刷等の方法を用いることができる。

ペーストは、例えば、約1 μ m以上2mm以下の厚さで塗布される。ペーストを塗布した後、使用するフッ素樹脂に応じた加熱温度及び加熱時間で加熱し、燃料極102または酸化剤極108が作製される。加熱温度及び加熱時間は、用いる材料によって適宜に選択されるが、例えば、加熱温度は100℃以上250℃以下、加熱時間は30秒以上30分以下とすることができる。

本実施例における固体電解質膜114は、固体電解質膜114を構成する材料に応じて適宜な方法を採用して作製することができる。

例えば、固体電解質膜114を有機高分子材料で構成する場合、有機高分子材料を溶媒に溶解させ、または、分散させた液体を、例えばポリテトラフルオロエ

チレンからなる剥離性シートの上にキャストして乾燥させることにより得ることができる。

このようにして得られた固体電解質膜 114 を燃料極 102 及び酸化剤極 108 で挟み、ホットプレスし、触媒電極—固体電解質膜接合体を得る。このとき、両電極 102、108 の触媒が設けられた面と固体電解質膜 114 とが接するようになる。

ホットプレスの実施温度は固体電解質膜 114 の材料に応じて選択されるが、固体電解質膜 114 や電極 102、108 の表面の固体高分子電解質を軟化点やガラス転移のある有機高分子で構成する場合、これらの有機高分子の軟化温度やガラス転移位温度を超える温度とすることができる。具体的には、例えば、温度は 100℃以上 250℃以下、圧力は 1 kg/cm²以上 100 kg/cm²以下、時間は 10 秒以上 300 秒以下とすることができる。

このようにして得られた触媒電極—固体電解質膜接合体が、図 1 に示した単セル構造 101 を構成する。

以上により、炭素粒子表面に接着層が設けられた触媒担持炭素粒子を触媒電極 102、108 に用いた燃料電池 100 を得ることができる。この燃料電池 100 においては、炭素粒子表面に接着層を設けることにより、触媒物質の接触面積が大きく、触媒物質同士の凝集が抑制されることから、高出力で長時間使用に対する耐性に優れた電池特性を有するものである。

このように集電体 421、423 と基体 104、110 とを接着した電極 102、108 を燃料電池 100 に利用することにより、燃料電池 100 の内部抵抗が小さくなり、出力特性の良好な燃料電池 100 を提供することが可能になる。

また、エンドプレート 120、122（図 2 参照）などを用いず、直接燃料極側の集電体 421 と燃料流路あるいは燃料容器 425 とを接触させ、燃料を供給することができるので、より薄型、小型軽量の燃料電池を得ることができる。

例えば、燃料極側の集電体 421 と燃料容器 425 とを、燃料物質に対する耐性を有する接着剤などを使って接着することもできるし、ボルト及びナットその他の締結部品を用いて固定することもできる。

燃料極側の集電体 421 と燃料流路あるいは燃料容器 425 とが接触しており、

例えば、燃料極の集電体 4 2 1 の表面全体に燃料が直接供給される場合、燃料極 1 0 2 の平面内における燃料濃度を均一にすることが好ましい。これにより、燃料極 1 0 2 の平面方向における水分勾配を低下させることができるため、燃料電池 1 0 0 の出力特性をさらに高めることができる。

また、酸化剤極 1 0 8 についても、エンドプレート 1 2 0、1 2 2 (図 2 参照) などを用いず、直接酸化剤や大気と接触させ、酸化剤を供給することができるので、燃料電池 1 0 0 をより薄型、小型軽量にすることができる。なお、酸化剤極 1 0 8 の集電体 4 2 3 は、包装部材などの小型化を阻害しない部材であれば、適宜これを介して酸化剤を供給することができる。

本実施例に係る燃料電池 1 0 0 は、軽量小型かつ高出力であるため、携帯電話その他の携帯端末機器用の燃料電池としても好適に用いることができる。

(第 2 の実施例)

複数個の第 1 の実施例に係る燃料電池 1 0 0 を単一の燃料電池セルとして、これらの燃料電池セルを相互に電氣的に接続し、組み合わせることにより、単一の燃料電池を形成することができる。

そのような燃料電池の一例を図 3 に示す。

図 3 に示す燃料電池 1 5 0 は、第 1 の実施例に係る燃料電池 1 0 0 からなる燃料電池セルを 2 個直列に接続することにより構成されている。2 個の燃料電池セルは、一方の燃料電池セルの集電体 4 2 1 と他方の燃料電池セルの集電体 4 2 3 とを接続電極 4 2 7 を介して電氣的に接続することにより、接続されている。さらに、接続電極 4 2 7 は電氣的絶縁体からなるシール 4 2 9 により封止されている。

2 個の燃料電池セルは単一の燃料容器 4 2 5 を共通に有している。また、2 個の燃料電池セルはパッケージ 4 3 1 により包装されている。接続電極 4 2 7 と接続されていない集電体 4 2 1、4 2 3 からはパッケージ 4 3 1 を突き抜けて出力端子 8、9 が延びている。また、パッケージ 4 3 1 の底面には複数個の開口が形成されており、この開口を介して、酸化剤極 1 0 8 に対して酸化剤が供給される。

図 3 に示した本実施例に係る燃料電池 1 5 0 は、第 1 の実施例に係る燃料電池 1 0 0 としての燃料電池セルから構成されているため、第 1 の実施例に係る燃料

電池 100 の利点をそのまま有する。

なお、本実施例においては、燃料電池 150 は 2 個の燃料電池セルからなるものとしたが、3 個以上の燃料電池セルから構成することも可能である。

さらに、複数の燃料電池セル 100 を並列または直列に、あるいは、並列と直列とを混合させて配置することにより、所望の電圧、容量の燃料電池を得ることができる。また、複数の燃料電池セルを平面状に並べる構成のみならず、複数の燃料電池セルを上下方向に積層させて配置することも可能である。

(第 3 の実施例)

複数個の第 1 の実施例に係る燃料電池 100 を単一の燃料電池セルとして、これらの燃料電池セルを相互に電氣的に接続し、組み合わせることにより形成した燃料電池の他の例を第 3 の実施例として図 4 に示す。

図 3 に示した燃料電池 150 においては、各燃料電池セル 100 はそれぞれ個別に固体電解質膜 114 を備えていたが、図 4 に示す第 3 の実施例に係る燃料電池 160 においては、二つの燃料電池セル 100 は単一の固体電解質膜 114 を共通の固体電解質膜 114 として備えている。この点以外は、本実施例に係る燃料電池 160 は図 3 に示した燃料電池 150 と同一の構成を有している。

本実施例に係る燃料電池 160 は、第 1 の実施例に係る燃料電池 100 としての燃料電池セルから構成されているため、第 1 の実施例に係る燃料電池 100 の利点をそのまま有する。

さらに、図 3 に示した第 2 の実施例に係る燃料電池 150 と比較して、固体電解質膜 114 の数を減らすことができるため、部品点数の減少及び製造工程の簡素化を図ることができる。

(第 4 の実施例)

複数個の第 1 の実施例に係る燃料電池 100 を単一の燃料電池セルとして、これらの燃料電池セルを相互に電氣的に接続し、組み合わせることにより形成した燃料電池のさらに他の例を第 4 の実施例として図 5 に示す。

本実施例に係る燃料電池 170 においては、燃料容器 425 は円筒形状に形成されており、この円筒形状の燃料容器 425 の外側表面及び内側表面上に、第 1 の実施例に係る燃料電池 100 が燃料電池セルとして配置されている。各燃料電

池セル100は、燃料極102が燃料容器425の表面上に位置するようにして、配置されている。

本実施例に係る燃料電池170は、第1の実施例に係る燃料電池100としての燃料電池セルから構成されているため、第1の実施例に係る燃料電池100の利点をそのまま有する。

さらに、図3に示した第2の実施例に係る燃料電池150及び図4に示した第3の実施例に係る燃料電池160と比較して、より小さいスペースに燃料電池セル100を配置することができるため、単位体積当たりの出力を上げることが可能である。

なお、本実施例に係る燃料電池170においては、燃料容器425の外側表面と内側表面の双方に燃料電池セル100が配置されているが、いずれ一方の表面上にのみ燃料電池セル100を配置することも可能である。

また、図3に示した第2の実施例に係る燃料電池150の場合と同様に、隣接する燃料電池セル100を接続電極427を介して相互に電氣的に接続することも可能である。

また、図4に示した第3の実施例に係る燃料電池160の場合と同様に、複数の燃料電池セル100の各々における固体電解質膜114を1個の共通の固体電解質膜として配置することも可能である。

次いで、以下に、第1の実施例に係る燃料電池100の具体例のいくつかを説明する。

[具体例1]

具体例1においては、触媒電極用すなわち燃料極102及び酸化剤極108(ガス拡散電極)用の炭素系材料として、厚さ0.19mmのカーボンペーパー(東レ社製)を用いた。

また、燃料極102及び酸化剤極108における集電体421、423となる多孔質金属板として、厚さ0.3mmのチタン板を用いた。このチタン板には燃料及び酸素ガスを透過させるために直径1mmの孔が、孔の中心間隔1.5mmとなるよう均一に設けられたものを用いた。また、チタン板は外部出力端子8、9を接続するためにカーボンペーパーよりも縦横にサイズが5mmずつ大きなも

のを用いた。

このカーボンペーパーとチタン板とを 10 kg/cm^2 程度の圧力で加圧した状態で、 10^{-5} Pa 、 1000°C で 10 分間ホットプレスすることにより、熱圧着した。

カーボンペーパーとチタン板との接着界面の断面を走査型電子顕微鏡で観察したところ、厚さ 10 nm 程度の反応層が均一に形成されていた。また、カーボンペーパーとチタン板とは十分高い強度で接着されていた。

チタン板と接着したカーボンペーパー表面には、次のようにして、触媒層 106、112 を形成した。

まず、固体高分子電解質としてアルドリッチ・ケミカル社製の 5 wt\% ナフィオンアルコール溶液を選択し、固体高分子電解質量が 0.1 乃至 0.4 mg/cm^3 となるように、 n -酢酸ブチルと混合攪拌して、固体高分子電解質のコロイド状分散液を調製した。

燃料極 102 の触媒としては、炭素微粒子（デンカブラック；電気化学社製）に粒子径 3 乃至 5 nm の白金-ルテニウム合金触媒を重量比で 50% 担持させた触媒担持炭素微粒子を使用し、酸化剤極 108 の触媒としては、炭素微粒子（デンカブラック；電気化学社製）に粒子径 3 乃至 5 nm の白金触媒を重量比で 50% 担持させた触媒担持炭素微粒子を使用した。

これらの触媒担持炭素微粒子を固体高分子電解質のコロイド状分散液に添加し、超音波分散器を用いてペースト状にした。このとき、固体高分子電解質と触媒の重量比が $1:1$ になるように混合した。このペーストをカーボンペーパー上にスクリーン印刷法で 2 mg/cm^2 の密度で塗布した後、加熱乾燥させて、燃料電池用電極 102、108 を作製した。

この電極を、デュポン社製固体電解質膜ナフィオン 112 の両面に温度 130°C 、圧力 10 kg/cm^2 でホットプレスし、触媒電極-固体電解質膜接合体 101 を作製した。

次に、この接合体 101 の燃料極側の集電体 421 となるチタン板に燃料容器 425 を密着させて周辺部を接着剤でシールすることによって、燃料電池セル 100 を作製した。

燃料容器 4 2 5 はアルミニウム製であり、燃料極側集電体 4 2 1 と接する面に、直径 1 mm の孔が 5 0 % の開孔率で多数均一に開いており、燃料を燃料極 1 0 2 に取り込める構造とした。

なお、燃料極側及び酸化剤極側のチタン板に外部出力端子 8、9 を取り付けて、燃料電池 1 0 0 の出力を取り出せるようにした。

この燃料電池 1 0 0 の燃料極 1 0 2 には、燃料を供給するための燃料容器 4 2 5 または燃料流路が燃料極側の集電体 4 2 1 の表面に接して設けられており、燃料が燃料極 1 0 2 の集電体 4 2 1 の表面に直接供給されるようになっている。また、酸化剤極 1 0 8 の集電体 4 2 3 の表面が直接大気と接しており、酸化剤極側の集電体 4 2 3 の表面には、酸化剤が酸化剤極 1 0 8 の集電体 4 2 3 の表面に直接供給されるようになっている。

本具体例に係る燃料電池は、燃料極 1 0 2 及び酸化剤極 1 0 8 の基体 1 0 4、1 1 0 と集電体 4 2 1、4 2 3 との締結方法として接着を用いたことにより、エンドプレート 1 2 0、1 2 2 (図 2 参照) 及びボルトとナット 1 3 などを用いて締結しなくても、これらを密着させることができた。このため、エンドプレート 1 2 0、1 2 2 を介さずに、燃料及び酸化剤をそれぞれの触媒電極 1 0 2、1 0 8 の集電体 4 2 1、4 2 3 の表面に直接供給する構成とすることができた。従って、燃料電池 1 0 0 をより薄型で軽量なものとすることができた。

燃料としては、燃料極 1 0 2 には 1 0 v / v % のメタノール水溶液を供給し、酸化剤極 1 0 8 には酸素を供給した。

燃料容器 4 2 5 に液体燃料を入れると、液体燃料は燃料容器 4 2 5 及びチタン製燃料極集電体 4 2 1 の孔、さらには、燃料極 1 0 2 の基体 1 0 4 を浸透して燃料極 1 0 4 の触媒層 1 0 6 に供給された。また、酸化剤極 1 0 8 においては、チタン製酸化剤極集電体 4 2 3 の孔、酸化剤極 1 0 8 の基体 1 1 0 を通過して空気中の酸素が酸化剤極 1 0 8 の触媒層 1 1 2 に供給された。

燃料及び酸化剤のそれぞれの流速は、5 ml / min 及び 5 0 ml / min とした。

この燃料電池 1 0 0 の出力を 1 気圧、2 5 °C の室温で測定したところ、1 0 0 mA / cm² の電流で 0. 4 V の出力が得られた。

また、本具体例に係る燃料電池を、外装体としてアルミニウム製ラミネートフィルムを用いて包装し、2個直列に接続した燃料電池を作製した。この燃料電池の出力として、 100 mA/cm^2 の電流で 0.8 V の出力が得られた。

このように、複数個の第1の実施例に係る燃料電池100を単一の燃料電池セルとして、これらの燃料電池セルを相互に電氣的に接続し、組み合わせることにより形成した燃料電池においても、高い出力特性が維持された。また、この燃料電池は薄型で小型軽量なものとすることができた。

[比較例1]

比較例として、集電体421'、423を設けない触媒電極—固体電解質膜接合体101を具体例1と同様にして作製した。この触媒電極—固体電解質膜接合体101を用いて、従来の燃料電池と同様に、すなわち、図2に示すように、燃料極102及び酸化剤極108のエンドプレート120、122をボルト及びナット13で締結することによって圧力をかけ、電氣的接触を得る燃料電池セルを作製し、具体例1と同様の条件下において、その出力特性を評価した。エンドプレート120、122としては、厚さ1mmのSUS304及び厚さ0.3mmのSUS304を用いた。

その結果、エンドプレート120、122の厚さが1mmの場合には、1気圧、 25°C の室温において 100 mA/cm^2 の電流で 0.36 V の出力が得られ、厚さが0.3mmの場合には 100 mA/cm^2 の電流で 0.2 V の出力が得られた。

厚さ0.3mmのエンドプレート120、122を用いた場合、エンドプレート120、122の剛性が不十分であるために、ボルトでエンドプレート120、122を締結した際に、エンドプレート120、122が曲がってしまっていた。このため、エンドプレート120、122と燃料極102及び酸化剤極108との電氣的な接触が不十分になり、接触抵抗が増加して燃料電池セル100の出力が低下したものと考えられる。

具体例1及び比較例1の比較から、カーボンペーパーと集電体421、423を接着させることによって、集電体421、423であるチタン板が0.3mmと薄くても、基体と集電体との良好な電氣的接触が得られ、燃料電池100の出

力を向上させることが可能であることが判明した。

また、具体例 1 に係る燃料電池には、エンドプレート 120、122 及びボルトとナットなどの締結部材 13 を用いる必要がないため、燃料電池 100 を薄型化、小型軽量化することができた。

[具体例 2]

触媒電極すなわち燃料極 102 及び酸化剤極 108 (ガス拡散電極) 用の炭素系材料として、厚さ 0.19 mm のカーボンペーパー (東レ社製) を用いた。

また、燃料極 102 及び酸化剤極 108 の集電体 421、423 となる多孔質金属板として、厚さ 0.4 mm のニッケル板を用いた。ニッケル板には燃料及び酸素ガスを透過させるために直径 1 mm の孔が中心間隔 1.5 mm となるように均一に設けられたものを用いた。この際、ニッケル板は外部出力端子 8、9 を接続するため、カーボンペーパーよりも縦横のサイズが 3 mm ずつ大きいものを用いた。

また、ロウ材としては、パラジウム粉末 100 mg にアルコール系溶剤 10 ml を加えてペースト状にしたものを準備した。

このロウ材をニッケル板の表面に厚さ 10 μ m 程度塗布し、その上にカーボンペーパーを重ねた。得られた積層物を真空加熱炉に入れた。真空度は 10^{-3} Pa 以下とし、1200℃の温度で 2 時間保持した後、炉内で自然冷却することによって、ニッケル板とカーボンペーパーとを接着した。カーボンペーパーとニッケル板は十分高い強度で接着されていた。

このニッケル板と接着したカーボンペーパーに、具体例 1 と同様にして、燃料極 102 及び酸化剤極 108 の触媒層 106、112 を形成することによって、燃料電池用電極 102、108 を作製した。

この電極 102、108 をデュポン社製固体電解質膜ナフィオン 112 の両面に温度 130℃、圧力 10 kg/cm² でホットプレスして触媒電極—固体電解質膜接合体 101 を作製した。

次に、この接合体 101 における燃料極 102 の集電体 421 となるニッケル板に燃料容器 425 を密着させて周辺部を接着剤でシールすることによって、燃料電池セル 100 を作製した。燃料容器 425 としては、具体例 1 と同様のもの

を用いた。

次いで、燃料極 102 及び酸化剤極 108 側のニッケル板に外部出力端子 8、9 を取り付けて、燃料電池 100 の出力を取り出せるようにした。

本具体例に係る燃料電池は、具体例 1 と同様な構成であり、燃料極 102 には、燃料を供給するための燃料容器 425 または燃料流路が燃料極側の集電体 421 の表面に接して設けられており、燃料が燃料極 102 の集電体 421 の表面に直接供給されるようになっている。また、酸化剤極 108 の集電体 423 の表面が直接大気と接しており、酸化剤極 108 の集電体 423 の表面には酸化剤が直接供給されるようになっている。

燃料容器 425 に液体燃料を入れると、液体燃料が燃料容器 425 及びニッケル製燃料極集電体 421 の孔、さらには、燃料極 102 の基体 104 を浸透して燃料極触媒層 106 に供給された。また、酸化剤極 108 においては、ニッケル製酸化剤極集電体 423 の孔、酸化剤極 108 の基体 110 を通過して空気中の酸素が酸化剤極 108 の触媒層 112 に供給された。

具体例 2 に係る燃料電池 100 の出力を、具体例 1 と同様の条件で測定したところ、0.43 V の出力が得られた。

[具体例 3]

触媒電極すなわち燃料極 102 及び酸化剤極 108 (ガス拡散電極) 用の炭素系材料として、厚さ 0.19 mm のカーボンペーパー (東レ社製) を用いた。

また、燃料極 102 及び酸化剤極 108 の集電体 421、423 となる導電性金属材料としては厚さ 0.07 mm の金メッシュを用いた。メッシュサイズは 100 メッシュである。

この金メッシュの表面にチタンを厚さ 10 nm 程度に蒸着した。この際、金メッシュは外部出力端子 8、9 を接続するためにカーボンペーパーよりも縦横のサイズが 3 mm ずつ大きなものを用いた。

この金メッシュをカーボンペーパーと積み重ねて、真空加熱炉中で圧力を 10 k g / c m² かけ、10⁻³ Pa 以下に真空排気した。次いで、700℃の温度で 2 時間保持した後、炉内で自然冷却することによって、金メッシュとカーボンペーパーとを接着した。カーボンペーパーと金メッシュは十分高い強度で接着され

ていた。

この金メッシュと接着したカーボンペーパーに、具体例 1 と同様に、燃料極 102 及び酸化剤極 108 の触媒層 106、112 を形成することによって、燃料電池用電極 102、108 を作製した。

この電極をデュポン社製固体電解質膜ナフイオン 112 の両面に温度 130℃、圧力 10 kg/cm² でホットプレスして触媒電極—固体電解質膜接合体 101 を作製した。

次に、この接合体 101 の燃料極側の集電体 421 となる金メッシュに燃料容器 425 を密着させて周辺部を接着剤でシールすることによって、燃料電池セル 100 を作製した。燃料容器 425 には具体例 1 と同様のものを用いた。

燃料極 102 及び酸化剤極 108 側の金メッシュに外部出力端子 8、9 を取り付け、燃料電池 100 の出力を取り出せるようにした。

本具体例に係る燃料電池は、具体例 1 と同様な構成であり、燃料極 102 には、燃料を供給するための燃料容器 425 または燃料流路が燃料極側の集電体 421 の表面に接して設けられており、燃料が燃料極 102 の集電体 421 の表面に直接供給されるようになっている。また、酸化剤極 108 の集電体 423 の表面が直接大気と接しており、酸化剤極 108 の集電体 423 の表面には酸化剤が直接供給されるようになっている。

燃料容器 425 に液体燃料を入れると、液体燃料が燃料容器 425 及び金メッシュ製燃料極集電体 421 の孔、さらには、燃料極 102 の基体 104 を浸透して燃料極 102 の触媒層 106 に供給された。また、酸化剤極 108 においては、金メッシュ製酸化剤極集電体 423 の孔、酸化剤極 108 の基体 110 を通過して空気中の酸素が酸化剤極 108 の触媒層 112 に供給された。

この燃料電池 100 の出力を、具体例 1 と同様の条件で測定したところ、0.42 V の出力が得られた。

以上の具体例及び比較例より、薄型の集電体 421、423 を備えた触媒電極 102、108 を用いることにより、エンドプレート 120、122 や締結部品 13 が不要となり、燃料電池 100 の小型軽量化が可能となることがわかった。さらに、本具体例に係る燃料電池は、小型軽量化が可能であるだけでなく、エン

ドプレート 120、122 や締結部品 13 を用いた燃料電池よりも高出力を発揮できることが確かめられた。

産業上の利用可能性

以上説明したように、本発明によれば、触媒電極の基体と集電体とを接着させることにより、集電体の薄型軽量化が可能となり、さらに、エンドプレートが不要となるため、燃料電池を薄型、小型軽量し、かつ、高い出力を発揮させることができる。

従って、本発明によれば、触媒電極の基体と集電体とを接着させることにより、高出力かつ薄型、小型軽量な燃料電池が実現される。

また、本発明において、燃料または酸化剤が燃料極側集電体または酸化剤極側集電体に直接供給される構成とすることにより、携帯端末機器などに用いるために充分小型軽量で、かつ、出力密度の高い燃料電池を実現することができる。

請求の範囲

1. 基体と、前記基体の一方の表面上に配置された集電体と、前記基体の他方の表面上に配置された触媒層と、からなる燃料電池用電極であって、
前記集電体と前記基体とは接着されていることを特徴とする燃料電池用電極。
2. 前記基体は炭素を主成分とすることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の燃料電池用電極。
3. 前記集電体は炭化物を形成し得る元素を含むことを特徴とする請求の範囲第2項に記載の燃料電池用電極。
4. 前記集電体は、Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo、W、Mn、Fe、Co、Ni、Al及びCから選択される一または二以上の元素を含むことを特徴とする請求の範囲第3項に記載の燃料電池用電極。
5. 前記集電体は、Au、Ag、Cu、Ptから選択される一または二以上の元素を含むことを特徴とする請求の範囲第1項または第2項に記載の燃料電池用電極。
6. 前記集電体は金属板または金属メッシュからなることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第3項の何れか一項に記載の燃料電池用電極。
7. 前記集電体の厚さは0.05mm以上、1mm以下であることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第6項の何れか一項に記載の燃料電池用電極。
8. 燃料極と、酸化剤極と、前記燃料極及び前記酸化剤極の間に挟持された固体電解質膜とを備える燃料電池であって、
前記燃料極または前記酸化剤極は請求の範囲第1項乃至第7項の何れか一項に

記載の燃料電池用電極からなるものであることを特徴とする燃料電池。

9. 前記燃料極が前記燃料電池用電極からなり、燃料は前記燃料電池用電極の集電体の表面に直接供給されることを特徴とする請求の範囲第8項に記載の燃料電池。

10. 前記燃料極が前記燃料電池用電極からなり、前記燃料極に燃料を供給するための燃料容器または燃料流路が前記燃料電池用電極の集電体の表面に接して設けられていることを特徴とする請求の範囲第8項に記載の燃料電池。

11. 前記酸化剤極が前記燃料電池用電極からなり、酸化剤は前記燃料電池用電極の集電体の表面に直接供給されることを特徴とする請求の範囲第8項乃至第10項の何れか一項に記載の燃料電池。

12. 前記酸化剤極を構成する前記燃料電池用電極の集電体の表面は直接大気と接することを特徴とする請求の範囲第8項乃至第11項の何れか一項に記載の燃料電池。

13. 前記集電体の表面が包装部材により包装されていることを特徴とする請求の範囲第8項乃至第11項の何れか一項に記載の燃料電池。

14. 前記燃料極に有機液体燃料が供給されることを特徴とする請求の範囲第8項乃至第13項の何れか一項に記載の燃料電池。

15. 隣接する燃料電池セルを接続電極を介して相互に接続することにより形成された複数個の燃料電池セルからなる燃料電池であって、前記燃料電池セルは請求の範囲第8項乃至第14項の何れか一項に記載の燃料電池からなるものであることを特徴とする燃料電池。

16. 前記複数の燃料電池セルの各々における固体電解質膜は1個の共通の固体電解質膜として形成されていることを特徴とする請求の範囲第15項に記載の燃料電池。

17. 円筒形の燃料容器と、複数の燃料電池セルと、からなる燃料電池であって、

前記燃料電池セルは請求の範囲第8項、第11項乃至第14項の何れか一項に記載の燃料電池からなり、

前記燃料電池セルの各々の前記燃料極は前記燃料容器の外側表面及び内側表面の少なくとも何れか一方の上に配列されていることを特徴とする燃料電池。

18. 相互に隣接する前記燃料電池セルを相互に接続する接続電極をさらに有することを特徴とする請求の範囲第17項に記載の燃料電池。

19. 前記複数の燃料電池セルの各々における固体電解質膜は1個の共通の固体電解質膜として形成されていることを特徴とする請求の範囲第18項または第19項に記載の燃料電池。

20. 基体と、前記基体の一方の表面上に配置された集電体と、前記基体の他方の表面上に配置された触媒層と、からなる燃料電池用電極の製造方法であって、

固体高分子電解質を含む粒子及び触媒担持炭素粒子を含有する塗布液を基体の一方の面に塗布して触媒層を形成する第一の工程と、

前記基体の他方の面と集電体とを接着する第二の工程と、
を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法。

21. 前記第二の工程は、前記基体と前記集電体とを熱圧着によって接着する工程からなるものであることを特徴とする請求の範囲第20項に記載の燃料電池用電極の製造方法。

22. 前記第二の工程は、前記基体と前記集電体とをロウ付けによって接着する工程からなるものであることを特徴とする請求の範囲第20項に記載の燃料電池用電極の製造方法。

23. 前記第二の工程におけるロウ付けは、Pd、Fe、Ti、Ni、Zr、Cd、Alから選択される一または二以上の元素を含むロウ材を用いて行われることを特徴とする請求の範囲第22項に記載の燃料電池用電極の製造方法。

24. 前記基体は炭素を主成分として含有し、
前記集電体は金属を含み、
前記第二の工程は、前記基体と前記集電体との間に金属炭化物からなる接着層を形成する工程からなるものであることを特徴とする請求の範囲第20項に記載の燃料電池用電極の製造方法。

25. 前記接着層は、Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo、W、Mn、Fe、Co、Ni、Alから選択される一または二以上の元素を含むことを特徴とする請求の範囲第24項に記載の燃料電池用電極の製造方法。

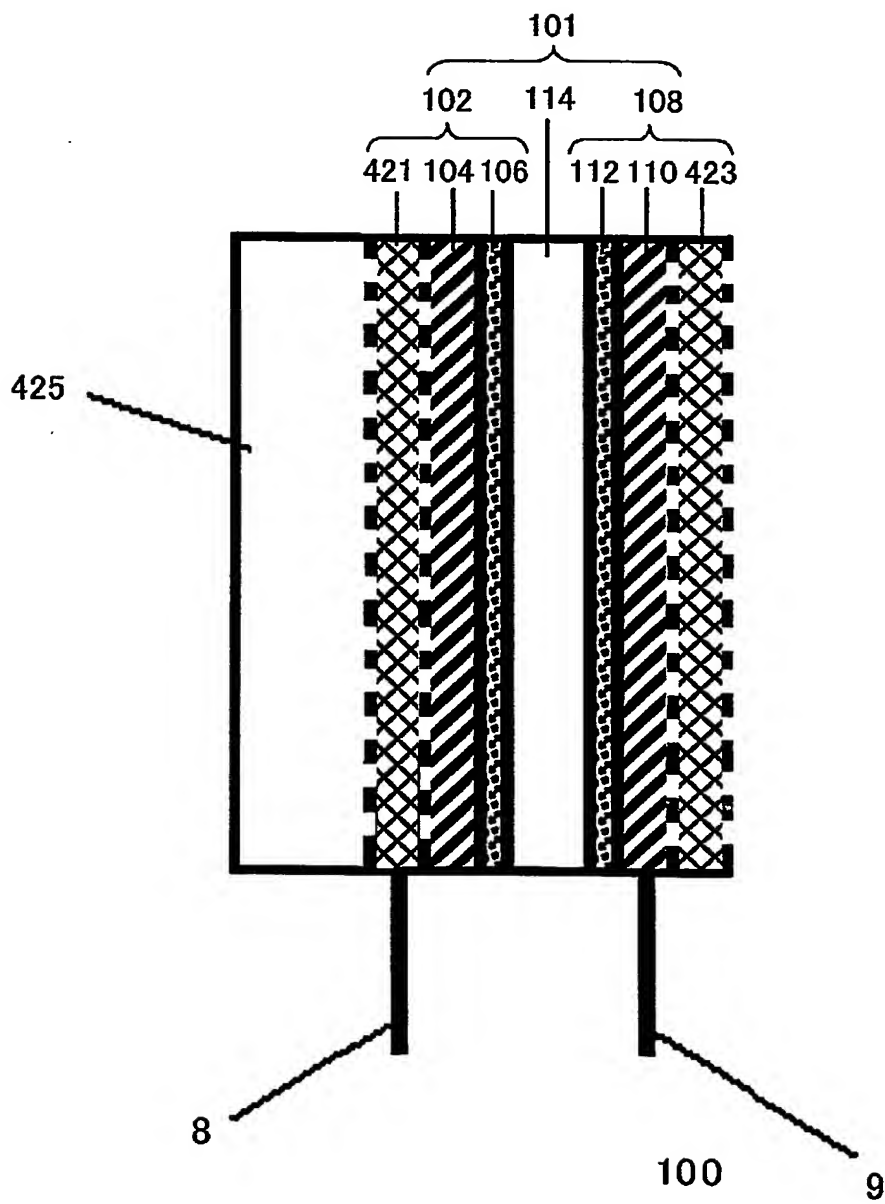
26. 請求の範囲第20項乃至第25項の何れか一項に記載の燃料電池用電極の製造方法によって燃料電池用電極を形成する工程と、

固体電解質膜と前記燃料電池用電極とを当接させた状態で前記固体電解質膜と前記燃料電池用電極とを圧着することにより、前記固体電解質膜と前記燃料電池用電極とを接合する工程と、

を含む燃料電池の製造方法。

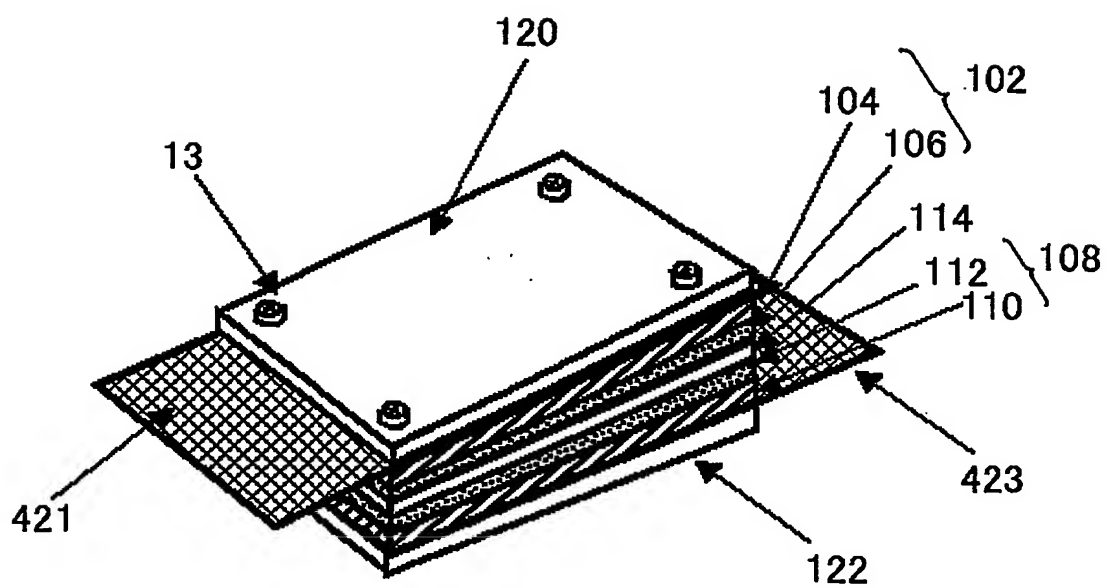
1 / 5

图 1



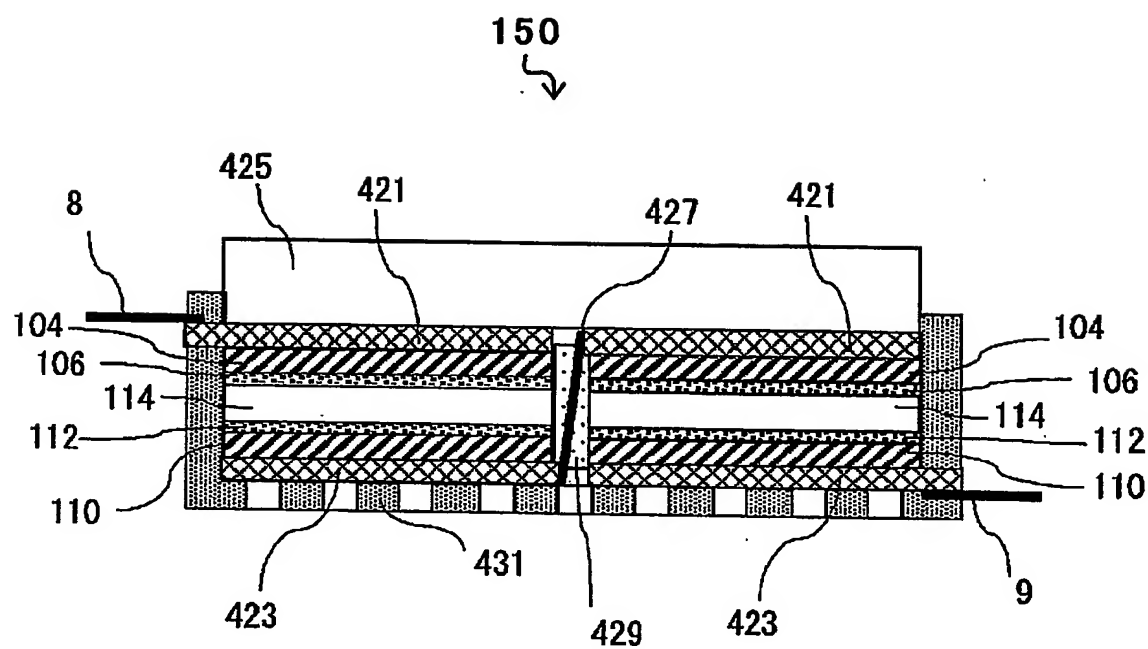
2/5

図 2



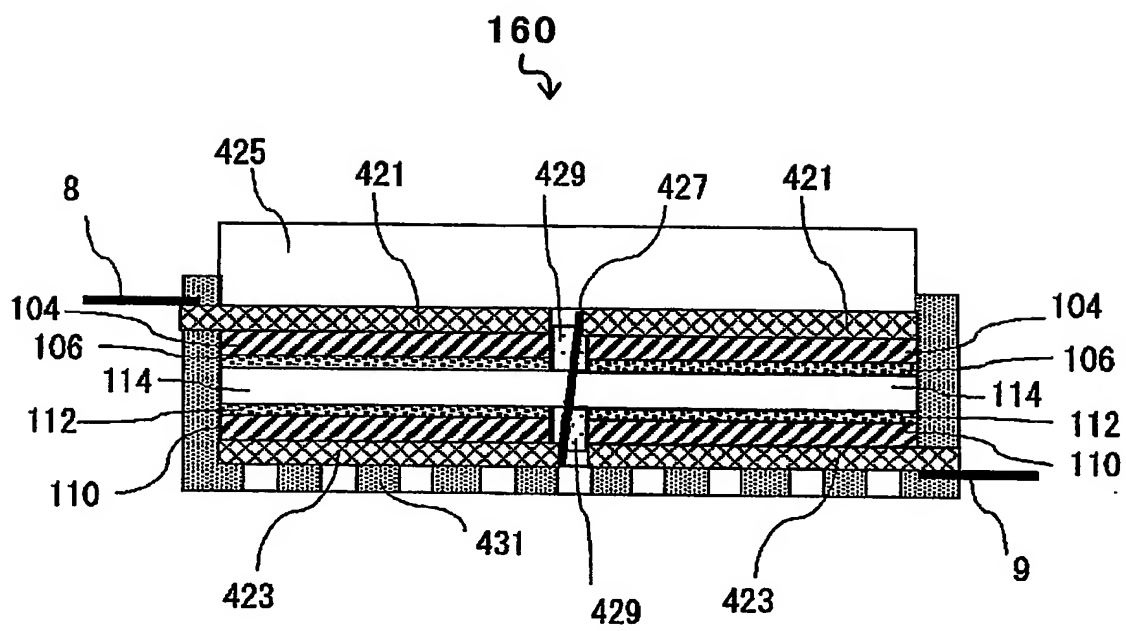
3 / 5

图 3



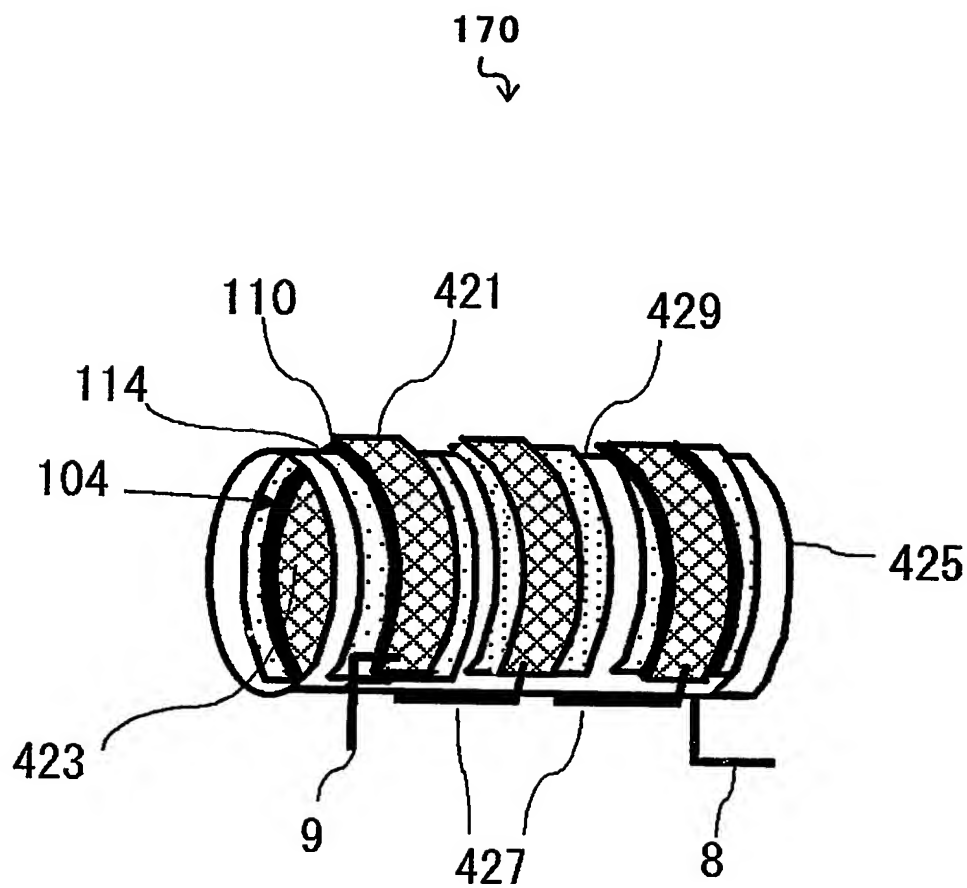
4 / 5

図 4



5/5

図5



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/07981

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ H01M8/02, H01M4/88, H01M4/96, H01M8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H01M8/02, H01M4/88, H01M4/96, H01M8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 2002-56863 A (Sony Corp.), 22 February, 2002 (22.02.02), Full text (Family: none)	1-14, 20-21, 26 15-19, 22-23 24-25
X Y A	JP 62-154571 A (Tanaka Kikinzoku Kogyo Kabushiki Kaisha et al.), 09 July, 1987 (09.07.87), Full text (Family: none)	1-14, 20-21 15-19, 22-23 24-26
X Y A	JP 5-125577 A (Tanaka Kikinzoku Kogyo Kabushiki Kaisha et al.), 21 May, 1993 (21.05.93), Full text (Family: none)	1-14, 20-21 15-19, 22-23 24-26

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
23 September, 2003 (23.09.03)Date of mailing of the international search report
14 October, 2003 (14.10.03)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP03/07981

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 00/69011 A1 (SFC SMART FUEL CELL GMBH.), 16 November, 2000 (16.11.00), Page 24, line 19 to page 26, line 23; Fig. 5 & EP 1194971 A2 & JP 2002-544650 A	15-19
Y	JP 58-176876 A (Shin-Kobe Electric Machinery Co., Ltd.), 17 October, 1983 (17.10.83), Claims; Fig. 2 (Family: none)	17-19
Y	JP 2-312164 A (Nippon Soken, Inc.), 27 December, 1990 (27.12.90), Claims; drawings (Family: none)	17-19
Y	JP 7-335635 A (Kabushiki Kaisha Sozo Kagaku), 22 December, 1995 (22.12.95), Claims (Family: none)	22-23
E,X	JP 2003-187810 A (Sony Corp.), 04 July, 2003 (04.07.03), Full text (Family: none)	1-15, 20-21, 26
E,X	JP 2003-282131 A (Samsung SDI Kabushiki Kaisha), 03 October, 2003 (03.10.03), Full text (Family: none)	1-16, 20
A	JP 2002-134135 A (Sony Corp.), 10 May, 2002 (10.05.02), (Family: none)	1-26
A	JP 1-163971 A (Shin-Kobe Electric Machinery Co., Ltd.), 28 June, 1989 (28.06.89), (Family: none)	1-26

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/02, H01M4/88, H01M4/96, H01M8/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/02, H01M4/88, H01M4/96, H01M8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2003年

日本国登録実用新案公報 1994-2003年

日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y A	JP 2002-56863 A (ソニー株式会社) 2002.02.22, 全文 (ファミリーなし)	1-14, 20-21, 26 15-19, 22-23 24-25
X Y A	JP 62-154571 A (田中貴金属工業株式会社 外2 名) 1987.07.09, 全文 (ファミリーなし)	1-14, 20-21 15-19, 22-23 24-26

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

23.09.03

国際調査報告の発送日

14.10.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

原 賢一

(印)

4X

9062

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y A	J P 5-125577 A (田中貴金属工業株式会社 外1名) 1993. 05. 21, 全文 (ファミリーなし)	1-14, 20-21 15-19, 22-23 24-26
Y	WO 00/69011 A1 (SFC SMART FUEL CELL GMBH) 2000. 11. 16, 第24頁19行-第26頁23行、図5 & E P 1194971 A2 & J P 2002-544650 A	15-19
Y	J P 58-176876 A (新神戸電機株式会社) 1983. 10. 17, 特許請求の範囲, 第2図 (ファミリーなし)	17-19
Y	J P 2-312164 A (株式会社日本自動車部品総合研究 所) 1990. 12. 27, 特許請求の範囲, 図面 (ファミリーなし)	17-19
Y	J P 7-335635 A (株式会社創造科学) 1995. 12. 22, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	22-23
E, X	J P 2003-187810 A (ソニー株式会社) 2003. 07. 04, 全文 (ファミリーなし)	1-15, 20-21, 26
E, X	J P 2003-282131 A (三星エスディアイ株式会社) 2003. 10. 03, 全文 (ファミリーなし)	1-16, 20
A	J P 2002-134135 A (ソニー株式会社) 2002. 05. 10 (ファミリーなし)	1-26
A	J P 1-163971 A (新神戸電機株式会社) 1989. 06. 28 (ファミリーなし)	1-26